

PCT

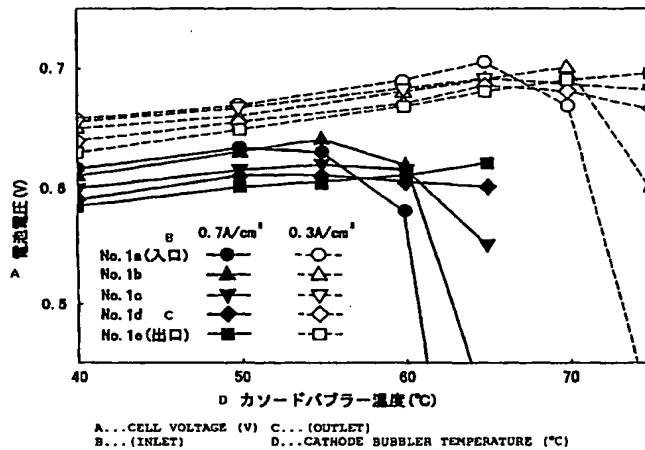
世界知的所有権機関  
国際事務局  
特許協力条約に基づいて公開された国際出願



(51) 国際特許分類7 H01M 8/04, 8/10	A1	(11) 国際公開番号 WO00/65678
		(43) 国際公開日 2000年11月2日(02.11.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/02506		行天久朗(GYOTEN, Hisaaki)[JP/JP]
(22) 国際出願日 2000年4月17日(17.04.00)		〒575-0013 大阪府四条畷市田原台3-10-2 Osaka, (JP)
(30) 優先権データ 特願平11/117620 1999年4月26日(26.04.99) JP		松本敏宏(MATSUMOTO, Toshihiro)[JP/JP]
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]		〒567-0821 大阪府茨木市末広町8-31-501 Osaka, (JP)
		神原輝壽(KANBARA, Teruhisa)[JP/JP]
		〒563-0021 大阪府池田市畑1-8-13 Osaka, (JP)
(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 羽藤一仁(HATOH, Kazuhito)[JP/JP]		(74) 代理人 石井和郎(ISSHII, Kazuo)
		〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜2丁目3番6号
		北浜山本ビル Osaka, (JP)
(72) 発明者; および (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ) 酒井 修(SAKAI, Osamu)[JP/JP]		(81) 指定国 CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)
		添付公開書類 国際調査報告書 補正書・説明書
		〒572-0055 大阪府寝屋川市御幸東町3-14-330 Osaka, (JP)
		小原英夫(OHARA, Hideo)[JP/JP]
		〒576-0016 大阪府交野市星田7-67-4 Osaka, (JP)
		新倉順二(NIHKURA, Junji)[JP/JP]
		〒573-0157 大阪府枚方市藤阪元町2-27-15 Osaka, (JP)

(54) Title: OPERATION METHOD FOR POLYMER ELECTROLYTIC FUEL CELL

(54) 発明の名称 高分子電解質型燃料電池の運転方法



## (57) Abstract

A method of operating a polymer electrolytic fuel cell, wherein its operating condition is regulated for an optimal one which is represented by a function of a gas flow rate and the difference between a saturated steam pressure and an actual steam pressure, by regulating an in-plane temperature distribution obtained by a cooling water flow direction and by the regulations of a cooling water inlet temperature and a cooling water flow rate, a gas supply amount, and a supplied moisture amount, and a current density, the method resolving conventional problems with a polymer electrolytic fuel cell that a performance distribution occurs in a single plane of a cell and a stable operation is difficult when a performance distribution is significant.

(57)要約

本明細書は、冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態が表されるよう調整して高分子電解質型燃料電池を運転する方法を開示する。この方法により、従来の高分子電解質型燃料電池において、電池の單一面内で性能分布が発生し、性能分布が大きい場合に、安定的に運転することが困難であったという問題点を解決する。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スードン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シェラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スウェーデン
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルガリア	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴー
BG	ブルガリア	GM	カンボジア	MD	モルドバ	TJ	タジキスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア	TR	トルコ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサオ	共和国		TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	ML	マリ	TZ	タンザニア
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	UA	ウクライナ
CG	コンゴー	ID	インドネシア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CH	スイス	IE	アイルランド	MW	マラウイ	US	米国
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CM	カメルーン	IN	インド	MZ	モザンビーク	VN	ベトナム
CN	中国	IS	アイスランド	NE	ニジェール	YU	ユーゴースラヴィア
CR	コスタ・リカ	IT	イタリア	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CU	キューバ	JP	日本	NO	ノールウェー	ZW	ジンバブエ
CY	キプロス	KE	ケニア	NZ	ニュージーランド		
CZ	チェコ	KG	キルギスタン	PL	ポーランド		
DE	ドイツ	KP	北朝鮮	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KR	韓国	RO	ルーマニア		

## 明 細 書

## 高分子電解質型燃料電池の運転方法

## 技術分野

本発明は、ポータブル電源、電気自動車用電源および家庭内コーチェネレーションシステム等に使用する常温作動型の高分子電解質型燃料電池に関する。

## 背景技術

高分子電解質型燃料電池は、水素を含有する燃料ガスと空気などの酸素を含有する酸化剤ガスとを電気化学的に反応させることで、電力と熱とを同時に発生させるものである。前記燃料電池は以下のように作製する。まず、水素イオンを選択的に輸送する高分子電解質膜の両面に、白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を主成分とする触媒反応層を形成する。次に、それぞれの触媒反応層の外面に、燃料ガスまたは酸化剤ガスに対する透過性および電子導電性を併せ持つ拡散層を形成する。触媒反応層とこの拡散層とが一体となって電極として機能する。そして、電極と電解質膜の接合体をMEA (Membrane Electrolyte Assembly) と呼ぶ。

次に、供給されるガスが燃料電池外にリークしたり、燃料ガスと酸化剤ガスが互いに混合しないように、電極の周囲には高分子電解質膜を挟んでガスケットを配置する。このガスケットを電極および高分子電解質膜とあらかじめ一体化し、一体化したものをMEAと呼ぶ場合もある。

さらにMEAの外側には、MEAを機械的に固定するとともに、隣接したMEAを互いに電気的に直列に接続するための導電性のセパレータ

板を配置する。セパレータ板のMEAと接触する部分には、電極面に反応ガスを供給し、かつ生成ガスや余剰ガスを運び去るためのガス流路を形成する。ガス流路はセパレータ板と別に設けることもできるが、セパレータの表面に溝を形成してガス流路とする方式が一般的である。

通常、燃料電池を実際に使用するときは、上述の単電池を数多く重ねた積層構造が採用されている。燃料電池の運転時には電力が発生されると共に発熱が起こるが、前記積層構造において、単電池1～2個毎に冷却板を設け、電池温度を一定に保つと同時に発生した熱エネルギーを温水などの形で利用できるようにしている。冷却板としては薄い金属板の内部を冷却水などの熱媒体が貫流する構造が一般的である。その他、単電池を構成するセパレータの背面、すなわち冷却水を流したい面に流路を形成し、セパレータ板を冷却板としても機能させる構造もある。その際、冷却水などの熱媒体をシールするためのOーリングやガスケットも必要となる。このシール方法では、Oーリング等を完全につぶすなどして冷却板の上下間で充分な導電性を確保することが必要である。

また、このような積層電池では、マニホールドと呼ばれる各単電池へ燃料ガスを供給および排出するための孔が必要である。このマニホールドとしては、冷却水の供給排出孔を積層電池内部に確保した、いわゆる内部マニホールド型が一般的である。

内部マニホールド型または外部マニホールド型のいずれを用いても、冷却板を含む複数の単電池を一方向に積み重ね、得られる積層電池の両端に一対の端板を配し、さらにその2枚の端板の外側から積層電池を締結ロッドで圧縮および固定することが必要である。締め付けにおいては、単電池を面内でできるだけ均一に締め付けることが望ましい。また、機械的強度の観点から、端板や締結ロッドには通常ステンレスなどの金属材料からなるものを用いる。これらの端板や締結ロッドと積層電池とを

絶縁板により電気的に絶縁し、電流が端板を通して外部に漏れ出ることのない構造とする。締結ロッドについても、セパレータ内部の貫通孔の中を通したり、端板を含む積層電池全体を金属製ベルトで締め上げる方式も提案されている。

以上に示した高分子電解質型燃料電池は、電解質膜が水分を含んだ状態で電解質として機能するため、供給する燃料ガスや酸化剤ガスを加湿して供給する必要がある。また、高分子電解質膜は、少なくとも100℃までの温度範囲では、含水率が高くなればなるほどイオン伝導度が増大し、電池の内部抵抗が低減し、高性能を発揮するという効果がある。そこで、電解質膜中の含水率を高めるために、供給されるガスを高加湿にして供給する必要がある。

しかし、電池運転温度において過度の高加湿ガスを供給すると、電池内部で結露水が発生し、水滴がスムーズなガスの供給を阻害する。また、酸化剤ガスが供給される電極（空気極）側では、発電によって水が生成するため、生成水の除去効率が低下し、電池性能を低下させるという問題が発生する。そのため、通常は電池運転温度より若干低めの露点を有する加湿ガスを調製し、電池内部に供給する。

ガスの加湿方法としては、所定の温度に保った脱イオン水中にガスを供給して通気（バブリング）して加湿するバブラー加湿方式や、電解質膜などの水分が容易に移動可能な膜の一方の面に所定の温度に保った脱イオン水を流し、他方の面にガスを流して加湿する膜加湿方式が一般的である。燃料ガスとして、メタノールやメタンなどの化石燃料を水蒸気改質したガスを用いる場合には、改質ガス中に水蒸気が含まれているため、加湿の必要がない場合もある。

加湿された燃料ガスや酸化剤ガスは、高分子電解質型燃料電池に供給され、発電に供する。このとき、積層電池中の任意の単電池の單一面内

では、電流密度の分布が発生する。

すなわち、燃料ガスはガス供給入り口部で所定の加湿がなされ供給されるが、燃料ガス中の水素が発電によって消費されるため、燃料ガス上流側では水素分圧が高く水蒸気分圧が低く、燃料ガス下流側では水素分圧が低く水蒸気分圧が高くなるという現象が発生する。また、酸化剤ガスもガス供給入り口部で所定の加湿がなされ供給されるが、酸化剤ガス中の酸素が発電によって消費され、発電によって生成した水が発生するため、酸化剤ガス上流側では酸素分圧が高く水蒸気分圧が低く、酸化剤ガス下流側では酸素分圧が低く水蒸気分圧が高くなるという現象が発生する。さらに、電池を冷却するための冷却水温度は、燃料電池の入り口側では低く出口側では高くなるため、単電池の單一面内に温度分布が発生する。以上のような理由から、電池の單一面内では電流密度分布（性能分布）が発生する。

また、上述のような理由で発生した、電池の單一面内での燃料ガス中の水素および水蒸気分圧の不均一や、酸化剤ガス中の酸素および水蒸気分圧の不均一、さらに温度分布などが、極端に大きくなり最適な状態から逸脱すると、極端な乾燥（オーバードライ）状態や、極端な濡れ（オーバーフラッディング）状態を招来し、電流密度分布の発生程度では收まらず、場合によっては電池として機能しなくなる。

さらに、上述のような理由で発生した、電池の單一面内での燃料ガス中の水素および水蒸気分圧の不均一や、酸化剤ガス中の酸素および水蒸気分圧の不均一、さらに温度分布などによって、電池の單一面内でオーバードライとオーバーフラッディングが共存する現象も発生しうる。

積層電池の積層数を増大させた場合、積層した多数の単電池の一部に上述のような問題が発生すると、その性能が低下した一部の単電池のために、積層電池全体の運転に支障を来す。すなわち、積層した単電池の

一部がオーバーフラッディングに陥った場合、そのオーバーフラッディングに陥った電池では、ガス供給のための圧力損失が増大してしまう。

ガス供給のマニホールドは、積層電池内のすべての単電池が共有するため、オーバーフラッディングに陥った単電池があると、他の単電池にもガスが流れにくくなり、結果として積層電池全体にオーバーフラッディングを招来することになりかねない。

逆に、積層電池の一部の単電池がオーバードライに陥った場合、オーバードライに陥った単電池においては、ガス供給のための圧力損失が減少する。したがって、オーバードライに陥った積層電池にはガスが流れやすくなり、結果として益々オーバードライを招来する。

上述のような問題は、燃料ガスを供給する燃料極側においても、酸化剤ガスを供給する空気極側においても、ガス入り口側に比べてガス出口側のガス中の水蒸気分圧が高くなることに起因する場合が多い。そこで、特表平9-511356に示されているように、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べて高くすることで、空気極下流部のオーバーフラッディングを抑制し、電池の單一面内の電流密度分布を低減させる試みもなされてきた。

しかし、積層電池にガスを供給する場合、ガス入り口部では必ず圧力損失が存在するため、積層電池内部では、供給ガスの圧力分布も存在し、必ず入り口側が高圧になる。空気極側では、水が生成するため、水蒸気の分圧は出口側ほど高くなるが、圧力分布の影響で、電池運転条件によっては、相対湿度は必ずしも出口側が高くなるとは限らない。そのため、入り口側ほど相対湿度が高くなる運転条件で電池を発電させ、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べて高くすると、ガス入り口

側でのオーバーフラッディングが加速され逆効果となる。

### 発明の開示

本発明は、上記問題点を解消すべく、高分子電解質膜を挟む一対の電極と、導電性セパレータと、前記電極に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給排出する手段と、前記燃料ガスおよび／または前記酸化剤ガスの加湿手段と、前記電極と平行な面方向に冷却水を流通する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の運転方法であって、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガス中の飽和水蒸気圧、前記燃料ガス中の水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の水蒸気圧、前記電極の温度、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を計測し、

前記冷却水の流通方向、前記冷却水の温度、前記冷却水の流量、前記燃料ガスの供給量、前記酸化剤ガスの供給量、前記燃料ガス中の湿分、前記酸化剤ガス中の湿分、前記電極の温度、前記電極の温度分布、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を調節することにより、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガス中の飽和水蒸気圧、前記燃料ガス中の水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の水蒸気圧、前記電極の温度、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を独立変数とする特性関数によって算出される特性値を、所定値に維持することを特徴とする高分子電解質型燃料電池の運転方法を提供する。

この場合、高分子電解質型燃料電池における燃料ガスおよび酸化剤ガスの排出口を、前記排出口の後段に設けられた熱交換器や全熱交換器などの不可避の圧力損失を除き、実質的に常圧に解放するのが有効である。

また、前記特性関数が、式（1）：

$$Y = V^m \times (\Delta P)^n \quad (1)$$

（式中、Vは燃料ガスまたは酸化剤ガスの流速、 $\Delta P$ は燃料ガスまたは酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧と水蒸気圧との差、mおよびnはあらかじめ定められた数値）で表され、式（1）より算出される特性値Yを、第1所定値以上でかつ第2所定値以下に維持するのが有効である。

また、高分子電解質型燃料電池の運転時間または出力特性に対応し、第1所定値、第2所定値、mおよびnよりなる群から選択される少なくとも1種を規定するのが有効である。

また、前記電極において燃料ガスまたは酸化剤ガスが導入される部分を電極出発点、前記電極において前記燃料ガスまたは前記酸化剤ガスが排出される部分を電極出口点とし、前記電極出発点の温度を前記電極出口点の温度より低くするのが有効である。

前記電極出発点から電極出口点までの間における電極の温度を、前記電極出発点から電極出口点までの距離に対して、上に凸となる曲線的に変化させるのが有効である。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の実施例に係る高分子電解質型燃料電池のセパレータの構造を示す上面図である。

図2は、本発明の実施例1に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

図3は、本発明の実施例2に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

図4は、本発明の実施例3に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

図5は、本発明の実施例4に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

図6は、本発明の実施例5に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

図7は、本発明の実施例6に係る高分子電解質型燃料電池の特性図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明の実施の形態は、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態となるように燃料電池を調整して運転することを特徴とする。

また、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \sim 70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布を低減させることができる。

また、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \sim 70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

また、ガス排出口が、ガス排出口の後段に設けられた熱交換器（全熱交換器などを含む）の不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放された高分子電解質型燃料電池において、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \sim 70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

また、ガス排出口が、ガス排出口の後段に設けられた熱交換器などの不可避の圧力損失を除いて実質的に常圧に解放された高分子電解質型燃料電池において、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス入り口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値より大きくなるよう調整し、かつ高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整によって高分子電解質型燃料電池の面内温度の分布を、ガス入り口近傍よりガス出口近傍の方が高くなるよう設定して、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \sim 70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

また、高分子電解質型燃料電池へのガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、高分子電解質型燃料電池のガス入り近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の

絶対値より大きくなるよう調整し、かつ高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整によって高分子電解質型燃料電池の面内温度の分布が直線的な分布より上に凸となるよう設定して、ガス出口近傍の、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $2,000 \sim 70,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、酸化剤ガス供給量と、酸化剤ガスに供給する加湿量と、電流密度とを調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池に供給するガスの入り口圧力損失を $0.5 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$ 以下にすることによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、電流密度が $0.5 \text{ A} / \text{cm}^2$ より小さい場合には、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値を $2,000 \sim 30,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転し、電流密度が $0.5 \text{ A} / \text{cm}^2$ より大きい場合には、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $8,000 \sim 40,000 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{sec} \cdot \text{m}$ となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却

水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流通面全体にわたっての、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値の分布が、 $10,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以下となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池の性能が経時的に劣化した場合には、冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が $20,000 \text{ kg} \cdot \text{f/sec} \cdot \text{m}$ 以上となるように調整して運転することによって、電池の單一面内の電流密度分布の不均一性を低減させることができる。

さらに好ましくは、高分子電解質型燃料電池のガス入り口側とガス出口側の内、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が大きい側を冷却水入り口側と同一方向とし、ガス入り口側とガス出口側の内、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差の積の絶対値が小さい側を冷却水出口側と同一方向とすることによって、電池の單一面内の電流密度分布を低減させることができる。

以下、本発明に好適の実施例を、図面を参照しながら説明する。

### 実施例 1

高分子電解質型燃料電池の單一面内での電流密度分布（性能分布）を確認するため、図1に示すように5分割したセパレータを用いて、電池の單一面内でセルを5分割し、それぞれの部位の性能を個別に測定できる単電池20個からなる積層電池を作製した。

M E A の作製は以下のように行った。粒径が数ミクロン以下のカーボン粉末を塩化白金酸水溶液に浸漬し、還元処理によりカーボン粉末の表面に白金触媒を担持させた。このときのカーボンと担持した白金の重量比は 1 : 1 とした。ついで、この白金担持カーボン粉末を高分子電解質のアルコール溶液中に分散させ、スラリー化した。

一方、電極となる厚さ  $250 \mu\text{m}$  のカーボンペーパーを、フッ素樹脂の水性ディスパージョン（ダイキン工業（株）製のネオフロンND1）に含浸した後、乾燥および  $400^\circ\text{C}$  で 30 分間の加熱処理をし、カーボンペーパーに撥水性を付与した。つぎに撥水処理を施した前記カーボンペーパーの片面にカーボン粉末を含む前記スラリーを均一に塗布して触媒層を形成し、これを電極とした。

以上 の方法で作製した 2 枚のカーボンペーパー電極を、触媒層を形成した面を内側に向け、高分子電解質膜を挟んで重ね合わせた後、乾燥した。

以上のカーボンペーパー電極の寸法は、長さ  $3.6\text{ cm}$ 、幅を  $9\text{ cm}$  とし、充分に大きい長さおよび幅を有する高分子電解質膜の中央に、一定の間隔を置いて 5 枚のカーボンペーパー電極を配置し、單一面内で 5 分割した電極を作製した。供給する燃料ガスがリークしたり、互いに混合しないように、電極の周囲に高分子電解質膜を挟んで、約  $250 \mu\text{m}$  の厚みのシリコーンゴムのシートを配し、 $120^\circ\text{C}$  で 5 分間ホットプレスし、M E A（電極電解質膜接合体）を得た。

セパレータは、厚さが  $4\text{ mm}$  で、その表面には切削加工により幅  $2\text{ mm}$ 、深さ  $1\text{ mm}$  のガス流路 1 を刻んで形成した。そして、図 1 に示すように、セパレータの周辺部にはガスのマニホールド孔 2 と冷却水のマニホールド孔 3 を配した。このような単電池を 2 セル積層した後、冷却水が流れる冷却流路を形成したセパレータからなる冷却部を積層し、このパタ

ーンを繰り返して積層した。冷却部のシール用Oーリングは用いなかつた。

このような単電池を20個積層し、両端部には金属製の集電板と電気絶縁材料の絶縁板を配し、さらに端板と端板の間を締結ロッドで固定して燃料電池モジュールを得た。このときの締結圧はセパレータの面積当たり $10\text{ kgf/cm}^2$ とした。

#### [評価]

上述のようにして得たモジュールに、燃料ガスとして純水素を $75^\circ\text{C}$ に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。

まず、電池運転温度を $75^\circ\text{C}$ に設定し、温度分布を極力抑えるため、 $75^\circ\text{C}$ に設定した $20\text{ L/min}$ と比較的大量の冷却水を流し、 $U_f$ （燃料ガス中の水素の消費率）=80%、 $U_o$ （酸化剤ガス中の酸素の消費率）=20%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図2には、前記モジュールを $0.3\text{ A/cm}^2$ と $0.7\text{ A/cm}^2$ の定電流密度で運転した場合の、前記モジュールを5つの部分に分割した部分モジュールにおける20個の単電池の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割したモジュールの最もガス入り口側に近い部分モジュールをNo. 1aとし、順次No. 1b、No. 1c、No. 1dとして、最もガス出口側に近い部分をNo. 1eとした。

図2より、 $0.3\text{ A/cm}^2$ の電流密度では、酸化剤ガスバブラー温度が比較的低い温度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高いことがわかる。しかし、バブラー温度を高くすると、ガス入り口に最も近い部分モジュールNo. 1aから順に性能が急激に低下した。このとき、部分

モジュールNo. 1aは、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることがわかった。また、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、0.2 kg·f/cm<sup>2</sup>であった。このときの、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速(V)と(m=1)、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差(ΔP)の積(n=1)(V·ΔP)との関係を表1に示した。

ここで、実際の蒸気圧>飽和蒸気圧の場合、ΔPが負となるため、V·ΔPも負になる。しかし、実際の蒸気圧が飽和蒸気圧より極端に大きくなることは考えにくいため、V·ΔPの絶対値を評価することで十分である。そこで、以下においては、絶対値を示した。

表1

バブラー温度(℃)		40	50	60	65	70	75
Y = V · ΔP (kgf/sm)	ガス入口	39,000	29,000	17,000	11,000	200	0
	ガス出口	33,000	25,000	13,000	9,000	2,500	0

V·ΔP(=Y)が、約2,000程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、V·ΔPが約30,000より大きい場合にはオーバードライ状態であり、最適な運転状態におけるV·ΔPは2,000~30,000程度であった。

次に、0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度では、酸化剤ガスバブラー温度が比較的低い温度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しながら、バブラー温度を高くすると、ガス入り口に最も近い部分モジュールNo. 1aの性能が急激に低下した。このとき、部分モジュールNo. 1aは、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることが分かった。また、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、0.4 kg·f/cm<sup>2</sup>であった。このときの、ガス入

口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速（V）と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差（ $\Delta P$ ）の積の絶対値（ $V \cdot \Delta P$ ）との関係を表2に示した。

表 2

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60	65
$V \cdot \Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	70,000	63,000	49,000	39,000	24,000	1,800
	ガス出口	58,000	53,000	45,000	39,000	31,000	20,000

$V \cdot \Delta P$  が、約 2,000 程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、 $V \cdot \Delta P$  が約 70,000 の場合にはややオーバードライ状態であり、最適な運転状態における  $V \cdot \Delta P$  は 2,000 ~ 70,000 程度であった。また、上記条件下では、電池の單一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。また、 $V \cdot \Delta P$  が 2,000 ~ 70,000 の範囲外の条件では、積層した電池構成単位の内、極端に性能の低下が観測される部分が発生した。

## 実施例 2

実施例 1 と同様にして燃料電池モジュールを作製し、燃料ガスとして純水素を 75 ℃ に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。

このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。75 ℃ に設定した冷却水量を 2 L / m i n 流し、 $U_f$  (燃料ガス中の水素の消費率) = 80 %、 $U_o$  (酸化剤ガス中の酸素の消費率) = 20 % に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図 3 には、前記モジュールを 0.3 A / cm<sup>2</sup> と 0.7 A / cm<sup>2</sup> の定

電流密度で運転した場合の、前記モジュールを5つに分割した部分モジュール中の20個の単電池の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割したモジュールの最もガス入り口側に部分モジュールをNo. 2aとし、順次No. 2b、No. 2c、No. 2dとして、最もガス出口側に近い部分モジュールをNo. 2eとした。

このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 2aからNo. 2eの部分モジュールの間で温度分布が発生した。電流密度が0.3A/cm<sup>2</sup>の場合の部分モジュールの単電池の平均温度は、No. 2aが74.9℃、No. 2bが75.6℃、No. 2cが76.5℃、No. 2dが77.5℃、No. 2eが78.0℃と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となつた。また、0.7A/cm<sup>2</sup>の場合の部分モジュールの単電池の平均温度は、No. 2aが75.2℃、No. 2bが77.1℃、No. 2cが79.5℃、No. 2dが81.9℃、No. 2eが83.1℃と、同様にガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となつた。

図3より、0.3A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合にも、0.7A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合においても、ガス入口部に近い部分モジュールNo. 2aおよびNo. 2bにおいては、温度が他の部分モジュールに比して相対的に低いため、激しいオーバーフラッディング現象による性能低下が観測された。逆に、ガス出口部付近の部分モジュールNo. 2dおよびNo. 2eにおいては、温度が相対的に高いため、激しいオーバードライ現象による性能低下が観測された。

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。そこで、特表平9-511356に示されているように、酸化剤ガスの流れ方向と冷却水の流れ方向を同方向とし、冷却水の温度分布により酸化剤ガスの下流部の温度を上流部に比べ

て高くすることで、空気極下流部のオーバーフラッディングを抑制し、電池の単一面内の電流密度分布を低減させる試みもなされてきた。しかし、本実施例においては、 $U_o = 20\%$ と、比較的低い $U_o$ による運転であったため、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.4 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$ と比較的高く、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果より、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇の方が大きく作用していた。そのため、本来ガス入口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、むしろガス出口側の方がオーバードライ状態にあった。さらにこれに対し、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となつたため、ガス出口側のオーバーフドライを増幅させ、ガス入口側のオーバーフラッディングを増幅させる逆効果となつた。

0.3 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表3に示す (式(1)において  $m = 1$ 、 $n = 1$ )。

表 3

バブラー温度(℃)	40	50	60	65	70	75
V · $\Delta P$ (kgf/cm <sup>2</sup> s)	ガス入口	35,000	20,000	15,000	9,000	100
	ガス出口	55,000	43,000	32,000	27,000	5,500

0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表4に示す。

表 4

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60	65
V・△P (kgf/sm)	ガス入口	60,000	53,000	48,000	36,000	21,000	1,000
	ガス出口	88,000	73,000	65,000	49,000	41,000	30,000

また、V・△Pが2,000～70,000の範囲外では、電池の単一面内でオーバーフラッディングとオーバードライが共存する部位が発生し、積層した20個の電池構成単位の内、極端に性能の低下が観測され、積層電池を安定的に運転することが困難であった。

### 実施例 3

実施例1と同様にして作製した燃料電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を75℃に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。

このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、は同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。冷却水は、ガス流れ方向と反対方向になるように導入した。75℃に設定した冷却水量を2L/m in流し、Uf(燃料ガス中の水素の消費率)=80%、Uo(酸化剤ガス中の酸素の消費率)=20%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図4には、前記モジュールを0.7A/cm<sup>2</sup>の定電流密度で運転した場合の、前記モジュールを5つに分割した部分モジュール中の20個の単電池の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割した部分モジュールの最もガス入り口側に近い部分モジュールをNo. 3aとし、順次No. 3b、No. 3c、No. 3dとして、最もガス出口側に近い部分モジュールをNo. 3eとした。

このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 3 a から No. 3 e のセルの間で温度分布が発生した。電流密度が  $0.3 \text{ A/cm}^2$  の場合の部分モジュール中の 20 個の電池構成単位の平均温度は、No. 3 a が  $78.2^\circ\text{C}$ 、No. 3 b が  $77.6^\circ\text{C}$ 、No. 3 c が  $76.7^\circ\text{C}$ 、No. 3 d が  $75.9^\circ\text{C}$ 、No. 3 e が  $75.0^\circ\text{C}$  と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が高く、下流部ほど温度が低い分布となった。また、 $0.7 \text{ A/cm}^2$  の場合の部分モジュール中の 20 個の電池構成単位の平均温度は、No. 3 a が  $83.2^\circ\text{C}$ 、No. 3 b が  $82.1^\circ\text{C}$ 、No. 3 c が  $79.8^\circ\text{C}$ 、No. 3 d が  $76.9^\circ\text{C}$ 、No. 3 e が  $75.1^\circ\text{C}$  と、同様にガスの流れに対して上流部ほど温度が高く、下流部ほど温度が低い分布となった。また、このときの温度分布は No. 3 a から No. 3 e までが直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

図 4 より、 $0.3 \text{ A/cm}^2$  の場合にも、 $0.7 \text{ A/cm}^2$  の電流密度の場合においても、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度依存性は、どの部分モジュールにおいても同様の傾向を示し、全ての部分モジュールにおいて非常に安定した特性を示した。

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。しかし、本実施例においては、 $U_0 = 20\%$  と、比較的低い  $U_0$  による運転であったため、酸化剤ガスバブラー温度が  $70^\circ\text{C}$  の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.4 \text{ kg \cdot f/cm}^2$  と比較的高く、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果より、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇の方が大きく作用していた。そのため、本来ガス入口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、むしろガス出口側の方がオーバードライ状態に

あった。さらにこれに対し、温度分布によってガス入口側の温度を相対的に上昇させる結果となつたため、ガス入口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス出口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果が得られた。

0. 3 A / cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表 5 に示す。

表 5

バブラー温度 (°C)		40	50	60	65	70	75
V · $\Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	25,000	15,000	10,000	7,000	5,000	2,000
	ガス出口	28,000	18,000	12,000	8,000	5,500	2,200

0. 7 A / cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表 6 に示す。

表 6

バブラー温度 (°C)		30	40	50	55	60	65
V · $\Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	35,000	23,000	18,000	16,000	11,000	8,000
	ガス出口	38,000	24,000	19,000	17,000	12,000	9,000

以上のことから、0. 3 A / cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、2,000 ~ 30,000 kg · f / s · m であり、0. 7 A / cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対

値 ( $V \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、8, 000～40, 000 kg·f/ $s \cdot m$  であった。また、上記条件下では、電池の單一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

#### 実施例 4

実施例 1 と同様にして作製した燃料電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75°C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。

このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。まず、電池運転温度を 75°C に設定し、温度分布を極力抑えるため、75°C に設定した 20 L/min の比較的大量の冷却水を流し、 $U_f$  (燃料ガス中の水素の消費率) = 80%、 $U_o$  (酸化剤ガス中の酸素の消費率) = 40% に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図 5 には、前記モジュールを  $0.7 A/cm^2$  の定電流密度で運転した場合の、前記モジュールを 5 つに分割した部分モジュール中の 20 個の単電池の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5 分割した部分モジュールの最もガス入り口側に近い部分モジュールを No. 4 a とし、順次 No. 4 b、No. 4 c、No. 4 d として、最もガス出口側に近い部分モジュールを No. 4 e とした。

図 5 より、 $0.7 A/cm^2$  の電流密度では、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかしながら、バブラー温度を高くすると、ガス出口に最も近い部分モジュール No. 4 e から順に性能が急激に低下した。このとき、No. 4 e は、内部抵抗の測定からオーバーフラッディング状態にあることが分かった。また、酸化剤ガスバブラー温度が 60°C の

場合のガス入り口部の圧損が、 $0.2 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$  であった。このときの、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表 7 に示す。

表 7

バブラー温度 (°C)		30	40	50	55	60
$V \cdot \Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	35,000	32,000	27,000	22,000	17,000
	ガス出口	18,000	14,000	11,000	7,000	5,000

$V \cdot \Delta P$  が、約 7,000 程度より小さい場合には、オーバーフラッディング状態、 $V \cdot \Delta P$  が約 32,000 の場合にはややオーバードライ状態であり、最適な運転状態における  $V \cdot \Delta P$  は 8,000 ~ 40,000 程度であった。また、上記条件下では、電池の單一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。また、 $V \cdot \Delta P$  のガス入口部とガス出口部の差が 12,000 以上あり、安定に運転できなかった。さらに、 $V \cdot \Delta P$  が、8,000 ~ 40,000 の範囲外では、部分モジュール中、積層した 20 個の電池構成単位の内、極端に性能の低下が観測される電池構成単位が発生した。

### 実施例 5

実施例 1 と同様にして作製した燃料電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75 °C に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、冷却水を通じて、発電試験を行った。

このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口は常圧に開放した。75 °C に設定した冷却水を 2 L / min 流

し、 $U_f$ （燃料ガス中の水素の消費率）=80%、 $U_o$ （酸化剤ガス中の酸素の消費率）=40%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図6には、前記モジュールを $0.7\text{ A}/\text{cm}^2$ の定電流密度で運転した場合の、前記モジュールを5つに分割した部分モジュール中の20個の単電池の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割した電池の最もガス入り口側に部分モジュールをNo. 5aとし、順次No. 5b、No. 5c、No. 5dとして、最もガス出口側に近い部分モジュールをNo. 5eとした。このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 5a～No. 5eの部分モジュールの間で温度分布が発生した。電流密度が $0.7\text{ A}/\text{cm}^2$ の場合の部分モジュール中の20個の電池構成単位の平均セル温度は、No. 5aが $75.1^\circ\text{C}$ 、No. 5bが $77.0^\circ\text{C}$ 、No. 5cが $79.7^\circ\text{C}$ 、No. 5dが $81.8^\circ\text{C}$ 、No. 5eが $83.0^\circ\text{C}$ と、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。また、このときの温度分布はNo. 5a～No. 5eまでが直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

図6より、 $0.7\text{ A}/\text{cm}^2$ の電流密度の場合、ガス入り口に近い部位ほど特性が高かった。しかし、バブラー温度依存性は、どの部分モジュールにおいても同様の傾向を示し、全ての部分モジュールにおいて非常に安定した特性を示した。

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。一方、ガス入口部の圧力損失により、ガス出口部に比べてガス入口部が高圧となるため、ガス入口部の相対湿度が上昇する。しかし、本実施例においては、酸化剤ガスバブラー温度が $70^\circ\text{C}$ の場合のガス入り口部の圧損が、 $0.2\text{ kg}\cdot\text{f}/\text{cm}^2$ と比較的低く、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇より、

生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果の方が大きく作用していた。そのため、本来ガス出口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、ガス入口側の方がオーバードライ状態にあった。さらにこれに対し、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となつたため、ガス出口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス入口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果となつた。

0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表 8 に示す。

表 8

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	60	65
$V \cdot \Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	36,000	33,000	27,000	23,000	18,000	10,000
	ガス出口	38,000	36,000	33,000	28,000	25,000	20,000

以上のことから、0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、10,000～38,000 kg·f/s·m であった。また、上記条件下では、電池の單一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

#### 実施例 6

実施例 1 と同様にして作製した燃料電池モジュールに、燃料ガスとして純水素を 75 ℃に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、酸化剤ガスとして空気を所定温度に保った脱イオン水バブラーを通じて供給し、

冷却水を通じて、発電試験を行った。

このとき、燃料ガス、酸化剤ガス、冷却水ともに同一方向に導入し、ガス出口を絞って、ガス出口部の圧力がゲージ圧で  $2.0 \text{ kg} \cdot \text{f} / \text{cm}^2$  となるよう調整した。75°Cに設定した冷却水を  $2 \text{ L} / \text{min}$  流し、 $U_f$  (燃料ガス中の水素の消費率) = 80%、 $U_o$  (酸化剤ガス中の酸素の消費率) = 50%に設定して電池面内の性能分布を調べた。

図7には、前記モジュールを  $0.7 \text{ A} / \text{cm}^2$  の定電流密度で運転した場合の、前記モジュールを5つに分割した部分モジュールにおける20個の電池構成単位の平均電圧特性の酸化剤ガスバブラー温度依存性を示した。5分割したモジュールの最もガス入り口側に近い部分モジュールをNo. 6aとし、順次No. 6b、No. 6c、No. 6dとして、最もガス出口側に近い部分モジュールをNo. 6eとした。

このとき、冷却水流量を比較的少なくしたため、No. 6a～No. 6eの部分モジュールの間で温度分布が発生した。電流密度が  $0.7 \text{ A} / \text{cm}^2$  の場合の部分モジュール中の20個の電池構成単位の平均セル温度は、No. 6aが75.0°C、No. 6bが76.0°C、No. 6cが77.8°C、No. 6dが80.8°C、No. 6eが82.0°Cと、ガスの流れに対して上流部ほど温度が低く、下流部ほど温度が高い分布となった。また、このときの温度分布はNo. 6a～No. 6e 5までが直線的な温度分布ではなく、直線的より上に凸な温度分布であった。

図7より、 $0.7 \text{ A} / \text{cm}^2$  の電流密度の場合、ガス入り口に近い部分モジュールほど特性が高かったことがわかる。しかし、バブラー温度依存性は、どの部分モジュールにおいても同様の傾向を示し、全ての部分モジュールにおいて非常に安定した特性を示した。

一般に、空気極側では、生成水の発生が起こるため、ガス出口に近い側ほど水蒸気分圧は増大する。一方、ガス入口部の圧力損失により、ガ

ス出口部に比べてガス入口部が高圧となるため、ガス入口部の相対湿度が上昇する。しかし、本実施例においては、酸化剤ガスバブラー温度が70℃の場合のガス入り口部の圧損が、0.1 kg·f/cm<sup>2</sup>と比較的低く、ガス入口部の圧力損失によるガス入口部での相対湿度の上昇より、生成水の発生によるガス出口部の水蒸気分圧の増大の効果の方が大きく作用していた。そのため、本来ガス出口側の方がオーバーフラッディング状態にあり、ガス入口側の方がオーバードライ状態にあった。さらにこれに対し、温度分布によってガス出口側の温度を相対的に上昇させる結果となつたため、ガス出口側のオーバーフラッディングを抑制し、ガス入口側のオーバードライも抑制し、安定な電池特性を得る効果となつた。

0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) との関係を表9に示す。

表9

バブラー温度(℃)		30	40	50	55	69	65
V · $\Delta P$ (kgf/sm)	ガス入口	26,000	20,000	15,000	12,000	10,000	8,000
	ガス出口	30,000	22,000	17,000	14,000	11,000	10,000

以上のことから、0.7 A/cm<sup>2</sup>の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の積の絶対値 ( $V \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、8,000～30,000 kg·f/s·mであった。また、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布を小さく抑えることが可能であった。

## 実施例 7

実施例 5 と全く同一の試験を行い、 $0.7 \text{ A/cm}^2$  の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $V^2 \cdot \Delta P$ 、および  $V \cdot \Delta P^2$ ) を求めた。これらの数値の関係を表 10 に示す。

表 10

バブラー-温度 (°C)		30	40	50	55	60	65
$V^2 \cdot \Delta P$ (kg·f/s <sup>2</sup> )	ガス入口	395,000	376,000	324,000	287,000	236,000	140,000
	ガス出口	467,000	457,000	439,000	386,000	360,000	306,000
$V \cdot \Delta P^2$ (kg·f) <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> ·s)	ガス入口	$1.18 \times 10^8$	$9.55 \times 10^7$	$6.08 \times 10^7$	$4.23 \times 10^7$	$2.47 \times 10^7$	$7.14 \times 10^6$
	ガス出口	$1.17 \times 10^8$	$1.02 \times 10^8$	$8.19 \times 10^7$	$5.68 \times 10^7$	$4.34 \times 10^7$	$2.61 \times 10^7$

表 10 に示す結果から、 $0.7 \text{ A/cm}^2$  の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $V^2 \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、約  $140,000 \sim 470,000 \text{ kg} \cdot \text{f/s}^2$  であった。また、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $V \cdot \Delta P^2$ ) の最適な範囲は、約  $7 \times 10^6 \sim 1.2 \times 10^8 \text{ (kg \cdot f)^2/m}^3 \cdot \text{s}$  であった。さらに、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布 (不均一性) を小さく抑えることが可能であった。

## 実施例 8

実施例 5 と全く同一の試験を行い、 $0.3 \text{ A/cm}^2$  の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $v^2 \cdot \Delta P$ 、

および  $v \cdot \Delta P^2$  を求めた。これらの数値の関係を表 1 1 に示す。

表 1 1

バブラー-温度 (°C)		40	50	60	65	70
$V^2 \cdot \Delta P$ (kg·f/s <sup>2</sup> )	ガス入口	86,000	51,000	42,000	27,000	400
	ガス出口	146,000	114,000	96,000	87,000	17,000
$V \cdot \Delta P^2$ (kg·f) <sup>2</sup> /m <sup>3</sup> ·s	ガス入口	$6.35 \times 10^7$	$1.94 \times 10^7$	$1.02 \times 10^7$	$3.38 \times 10^6$	650
	ガス出口	$1.35 \times 10^8$	$6.98 \times 10^7$	$3.88 \times 10^7$	$2.64 \times 10^7$	857,000

表 1 1 に示す結果から、0.3 A/cm<sup>2</sup> の電流密度の場合の、ガス入口近傍とガス出口近傍のバブラー温度と、ガス流速 (v) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $V^2 \cdot \Delta P$ ) の最適な範囲は、約 15,000 ~ 150,000 kg·f/s<sup>2</sup> であった。また、ガス流速 (V) と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差 ( $\Delta P$ ) の関数の絶対値 ( $V \cdot \Delta P^2$ ) の最適な範囲は、約  $0.8 \times 10^6$  ~  $1.4 \times 10^8$  (kg·f)<sup>2</sup>/m<sup>3</sup>·s であった。さらに、上記条件下では、電池の単一面内での性能分布 (不均一性) を小さく抑えることが可能であった。

### 産業上の利用の可能性

本発明によると、高分子電解質型燃料電池の冷却水流通方向と冷却水入り口温度と冷却水流量の調整による面内温度分布と、ガス供給量と、供給加湿量と、電流密度とを調整することによって、ガス流速と、飽和蒸気圧と実際の蒸気圧との差とで表される関数によって、最適な運転状態が表されるよう調整して運転することによって、高分子電解質型燃料電池を高性能で安定に運転可能であることが判明した。

## 請求の範囲

1. 高分子電解質膜を挟む一対の電極と、導電性セパレータと、前記電極に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給排出する手段と、前記燃料ガスおよび／または前記酸化剤ガスの加湿手段と、前記電極と平行な面方向に冷却水を流通する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の運転方法であつて、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガス中の飽和水蒸気圧、前記燃料ガス中の水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の水蒸気圧、前記電極の温度、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を計測し、

前記冷却水の流通方向、前記冷却水の温度、前記冷却水の流量、前記燃料ガスの供給量、前記酸化剤ガスの供給量、前記燃料ガス中の湿分、前記酸化剤ガス中の湿分、前記電極の温度、前記電極の温度分布、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を調節することにより、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガス中の飽和水蒸気圧、前記燃料ガス中の水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の水蒸気圧、前記電極の温度、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を独立変数とする特性関数によって算出される特性値を、所定値に維持することを特徴とする高分子電解質型燃料電池の運転方法。

2. 高分子電解質型燃料電池における燃料ガスおよび酸化剤ガスの排出口を、前記排出口の後段に設けられた熱交換器の不可避の圧力損失を除き、実質的に常圧に解放することを特徴とする請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

3. 前記特性関数が、式（1）：

$$Y = V^m \times (\Delta P)^n \quad (1)$$

（式中、Vは燃料ガスまたは酸化剤ガスの流速、 $\Delta P$ は燃料ガスまたは酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧と水蒸気圧との差、mおよびnはあらかじめ定められた数値）で表され、式（1）より算出される特性値Yを、第1所定値以上でかつ第2所定値以下に維持することを特徴とする請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

4. 高分子電解質型燃料電池の運転時間または出力特性に対応し、第1所定値、第2所定値、mおよびnよりなる群から選択される少なくとも1種を規定することを特徴とする請求の範囲第3項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

5. 前記電極において燃料ガスまたは酸化剤ガスが導入される部分を電極出発点、前記電極において前記燃料ガスまたは前記酸化剤ガスが排出される部分を電極出口点とし、前記電極出発点の温度を前記電極出口点の温度より低くすることを特徴とする請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

6. 前記電極出発点から電極出口点までの間における電極の温度Yを、前記電極出発点から電極出口点までの距離Xに対して、上に凸となる曲線的に変化させることを特徴とする請求の範囲第5項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

## 補正書の請求の範囲

[2000年9月5日(05.09.00)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲3は取り下げられた；出願当初の請求の範囲1は補正された；他の請求の範囲は変更なし。(2頁)]

1. (補正後) 高分子電解質膜を挟む一対の電極と、導電性セパレータと、前記電極に燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給排出する手段と、前記燃料ガスおよび／または前記酸化剤ガスの加湿手段と、前記電極と平行な面方向に冷却水を流通する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の運転方法であつて、

前記燃料ガスのガス流速、前記酸化剤ガスのガス流速、前記燃料ガス中の飽和水蒸気圧、前記燃料ガス中の水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧、前記酸化剤ガス中の水蒸気圧、前記電極の温度、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を計測し、

前記冷却水の流通方向、前記冷却水の温度、前記冷却水の流量、前記燃料ガスの供給量、前記酸化剤ガスの供給量、前記燃料ガス中の湿分、前記酸化剤ガス中の湿分、前記電極の温度、前記電極の温度分布、および出力電流値よりなる群から選択される少なくとも1種の物理量を調節することにより、

$$\text{式 (1)} : Y = V^m \times (\Delta P)^n \quad (1)$$

(式中、Vは燃料ガスまたは酸化剤ガスの流速、 $\Delta P$ は燃料ガスまたは酸化剤ガス中の飽和水蒸気圧と水蒸気圧との差、mおよびnはあらかじめ定められた数値)で表される特性関数によって算出される特性値Yを、第1所定値以上でかつ第2所定値以下に維持することを特徴とする高分子電解質型燃料電池の運転方法。

2. 高分子電解質型燃料電池における燃料ガスおよび酸化剤ガスの排出口を、前記排出口の後段に設けられた熱交換器の不可避の圧力損失を除き、実質的に常圧に解放することを特徴とする請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

## 3. (削除)

4. 高分子電解質型燃料電池の運転時間または出力特性に対応し、第1所定値、第2所定値、 $m$ および $n$ よりなる群から選択される少なくとも1種を規定することを特徴とする請求の範囲第3項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

5. 前記電極において燃料ガスまたは酸化剤ガスが導入される部分を電極出発点、前記電極において前記燃料ガスまたは前記酸化剤ガスが排出される部分を電極出口点とし、前記電極出発点の温度を前記電極出口点の温度より低くすることを特徴とする請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

6. 前記電極出発点から電極出口点までの間における電極の温度 $Y$ を、前記電極出発点から電極出口点までの距離 $X$ に対して、上に凸となる曲線的に変化させることを特徴とする請求の範囲第5項記載の高分子電解質型燃料電池の運転方法。

## 条約 19 条に基づく説明書

請求の範囲第 3 項を第 1 項に組み込むことにより、本発明に係る高分子電解質型燃料電池の運転方法に用いられる特性関数を明確にした。いずれの引用例にも、このような特性関数は開示されていない。

FIG. 1

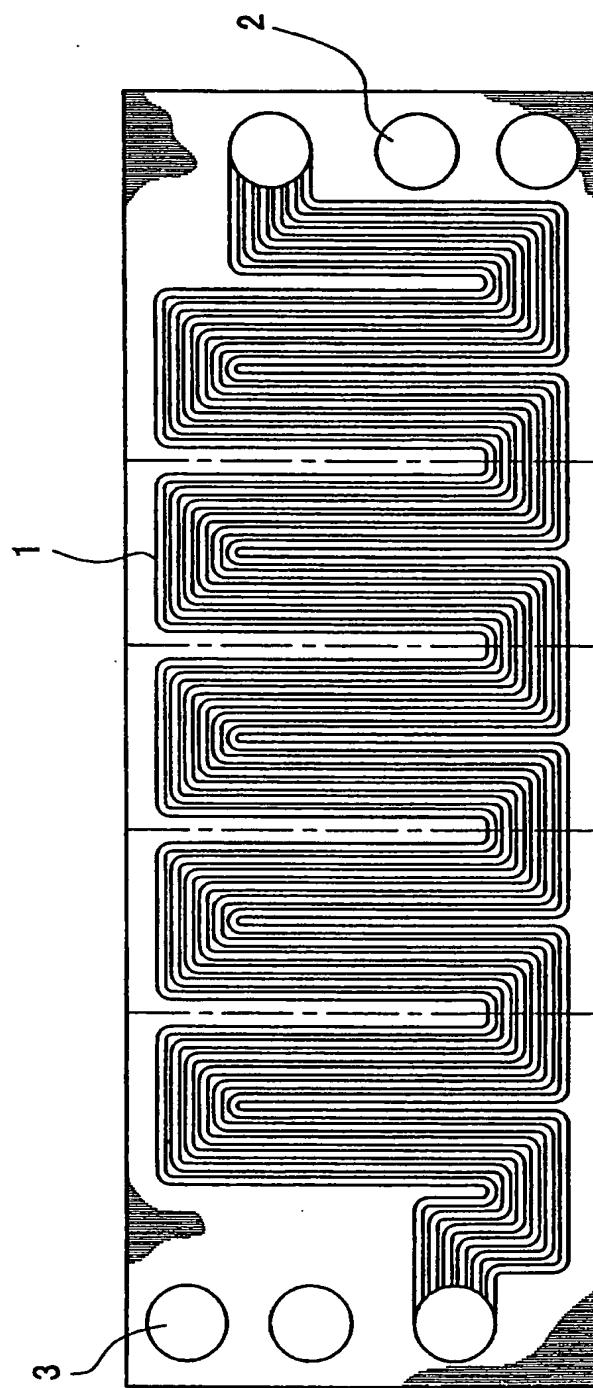


FIG. 2

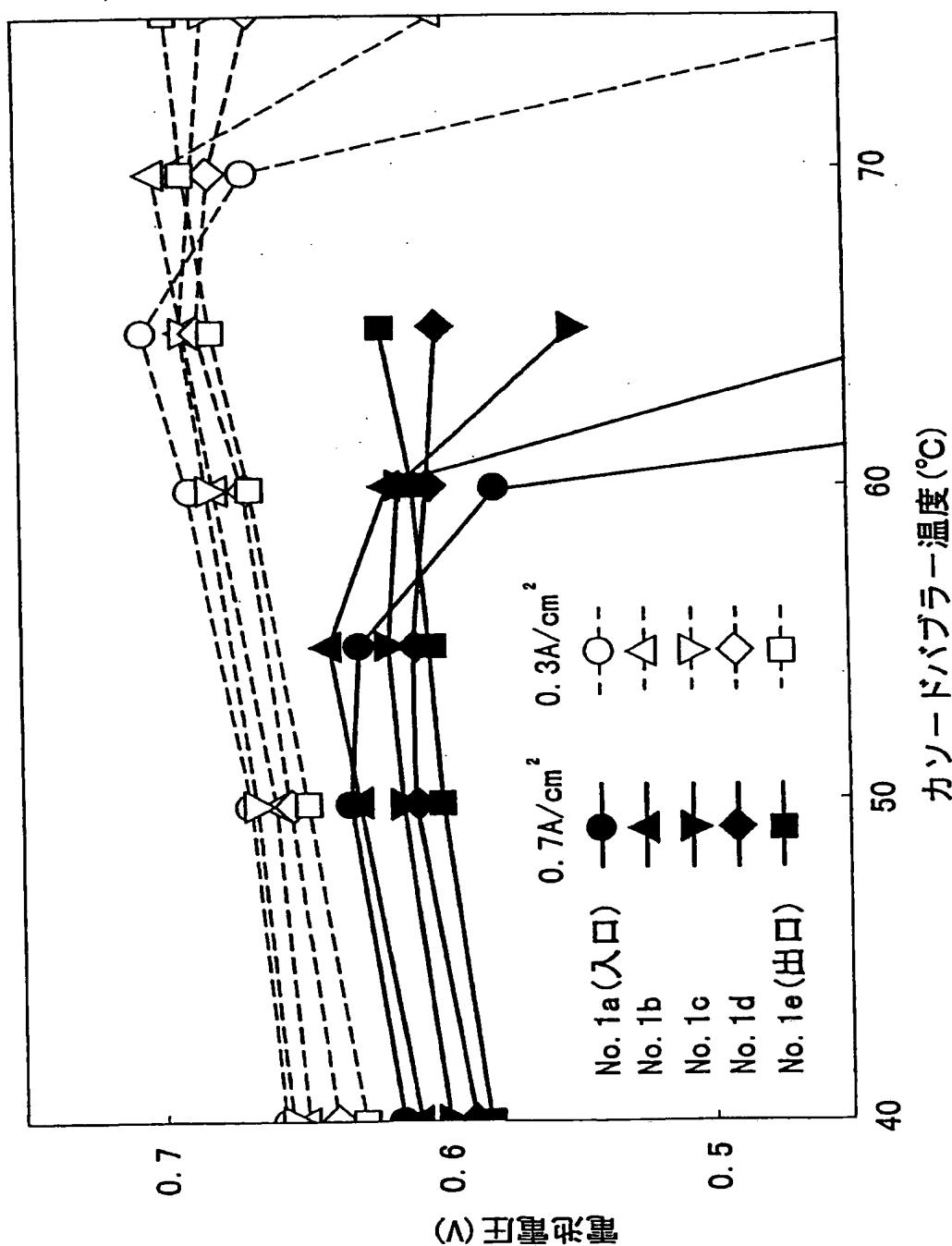


FIG. 3

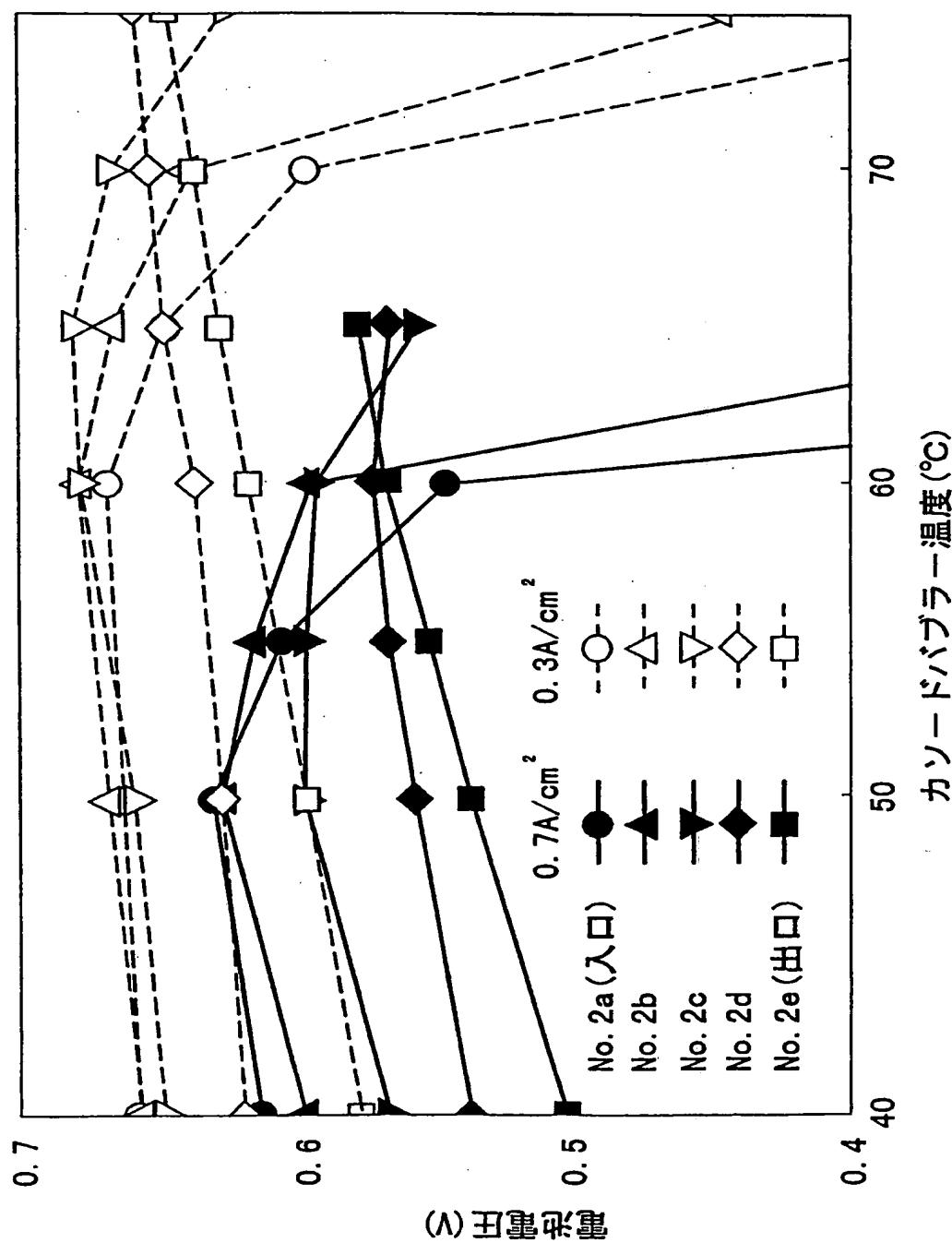


FIG. 4

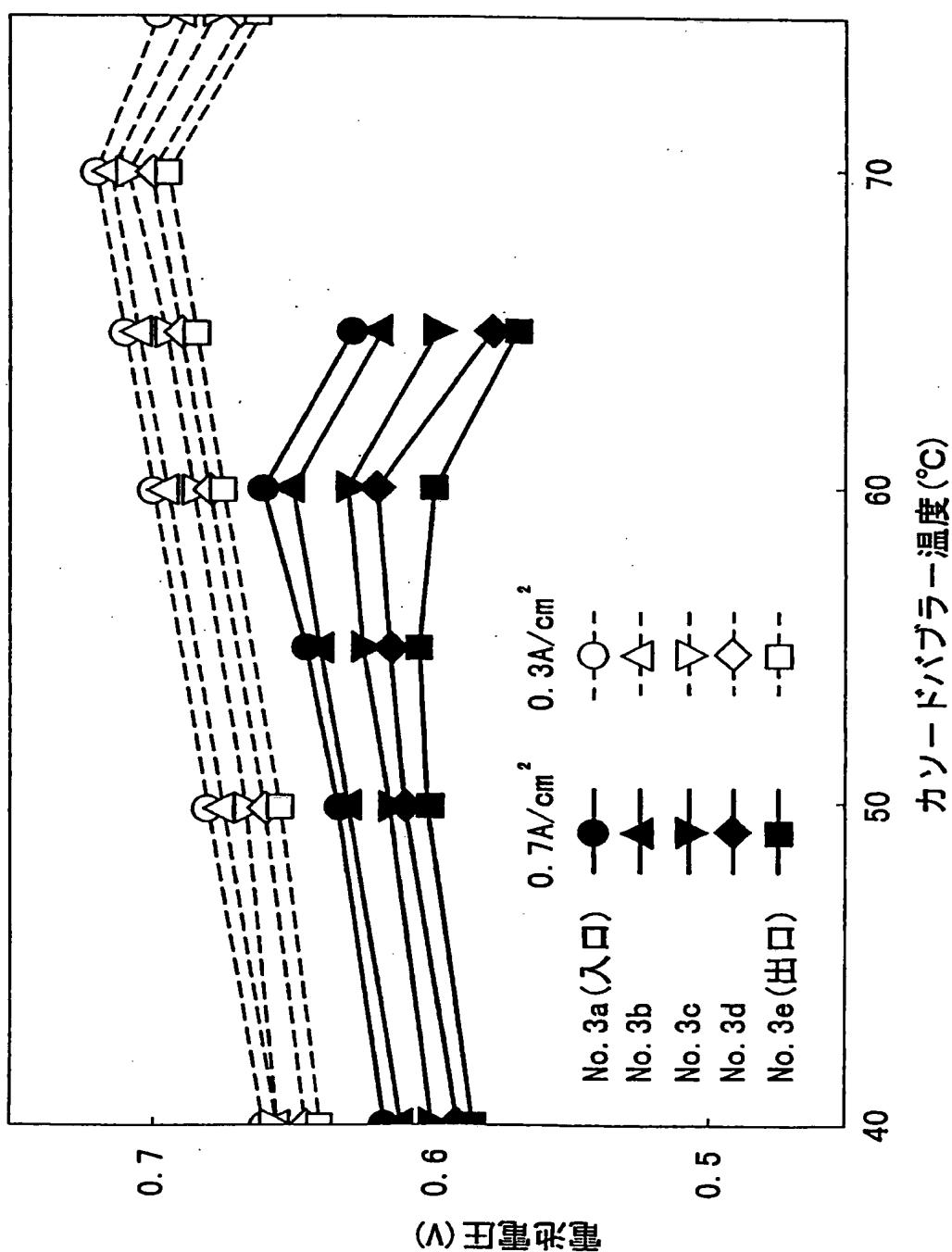


FIG. 5

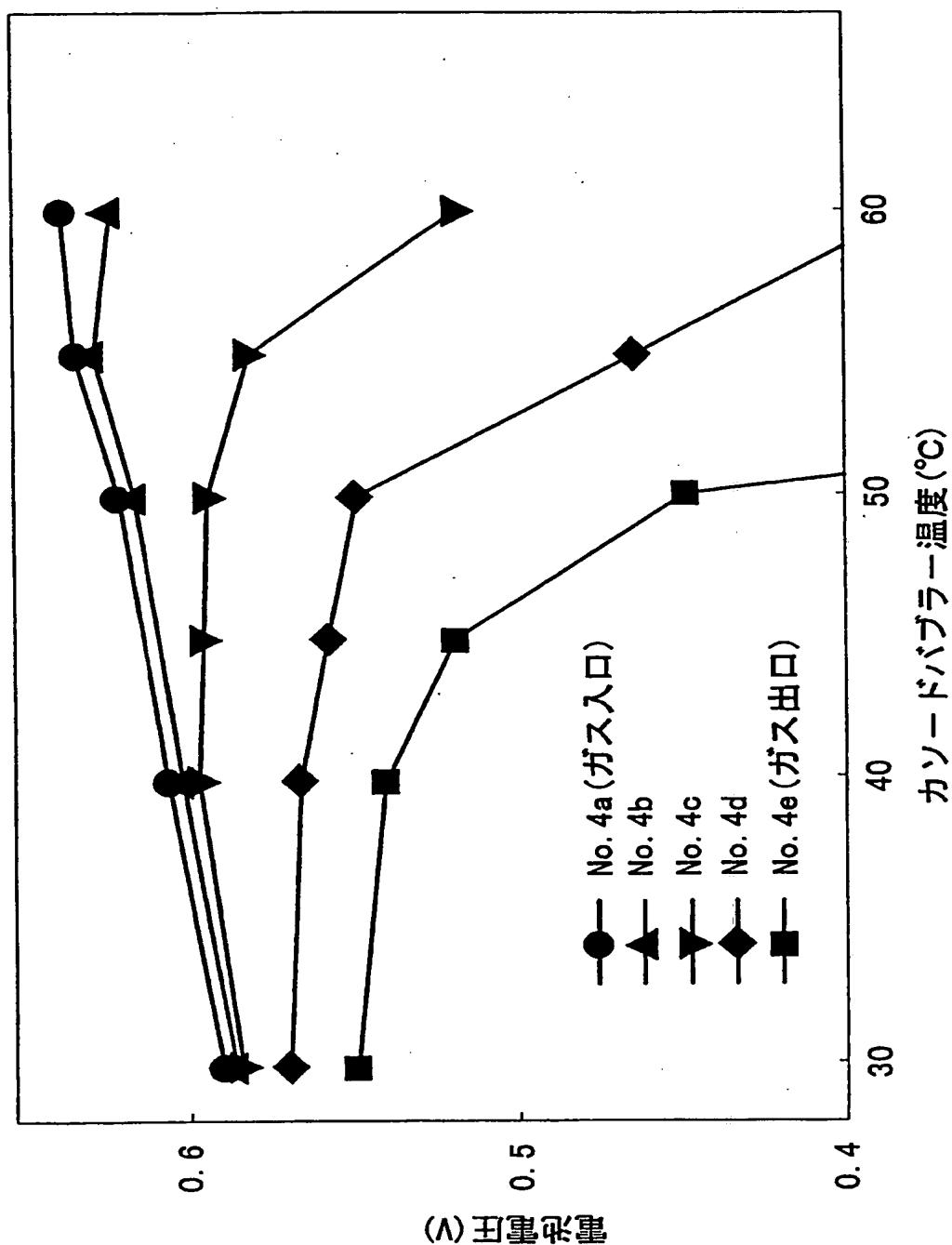


FIG. 6

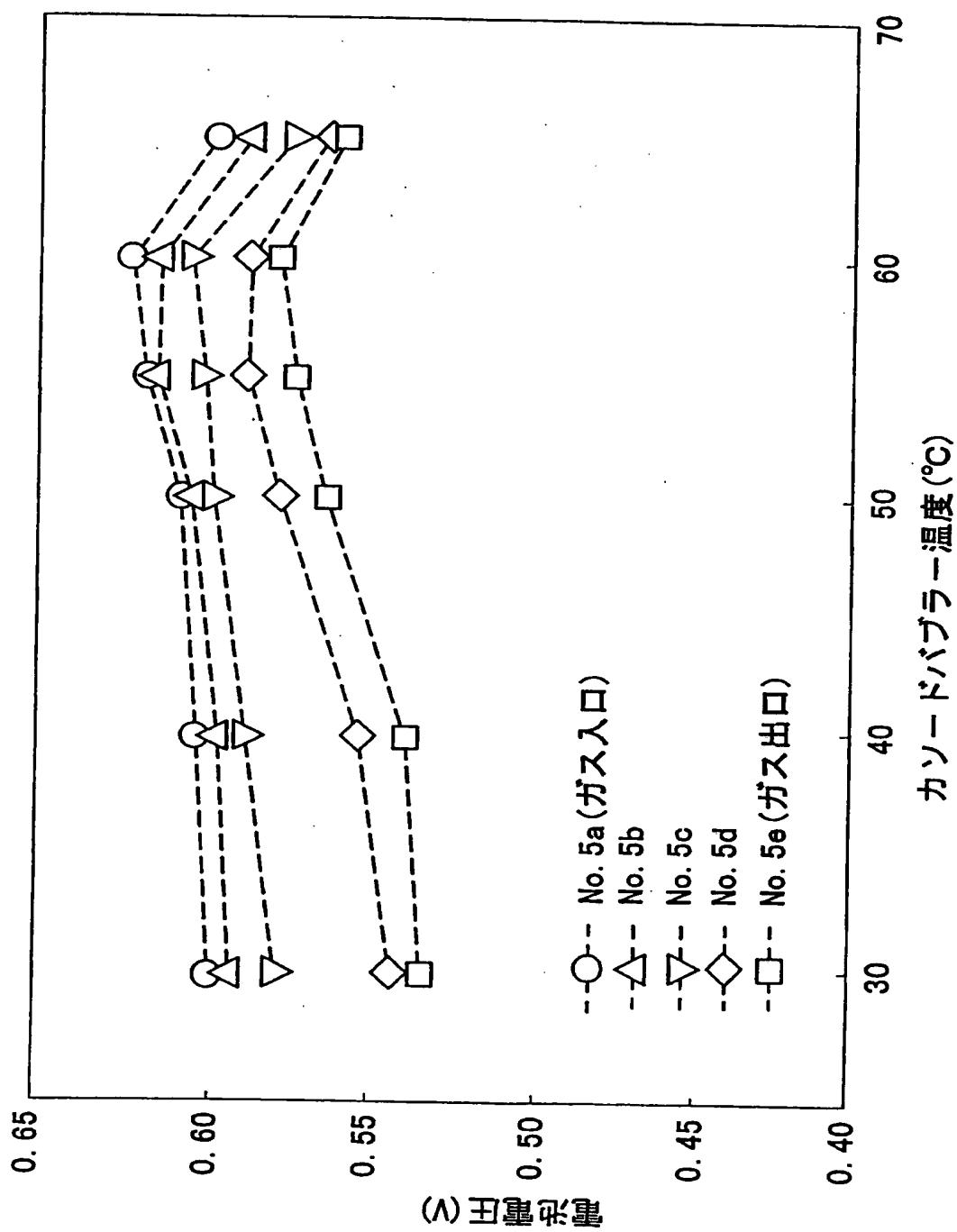
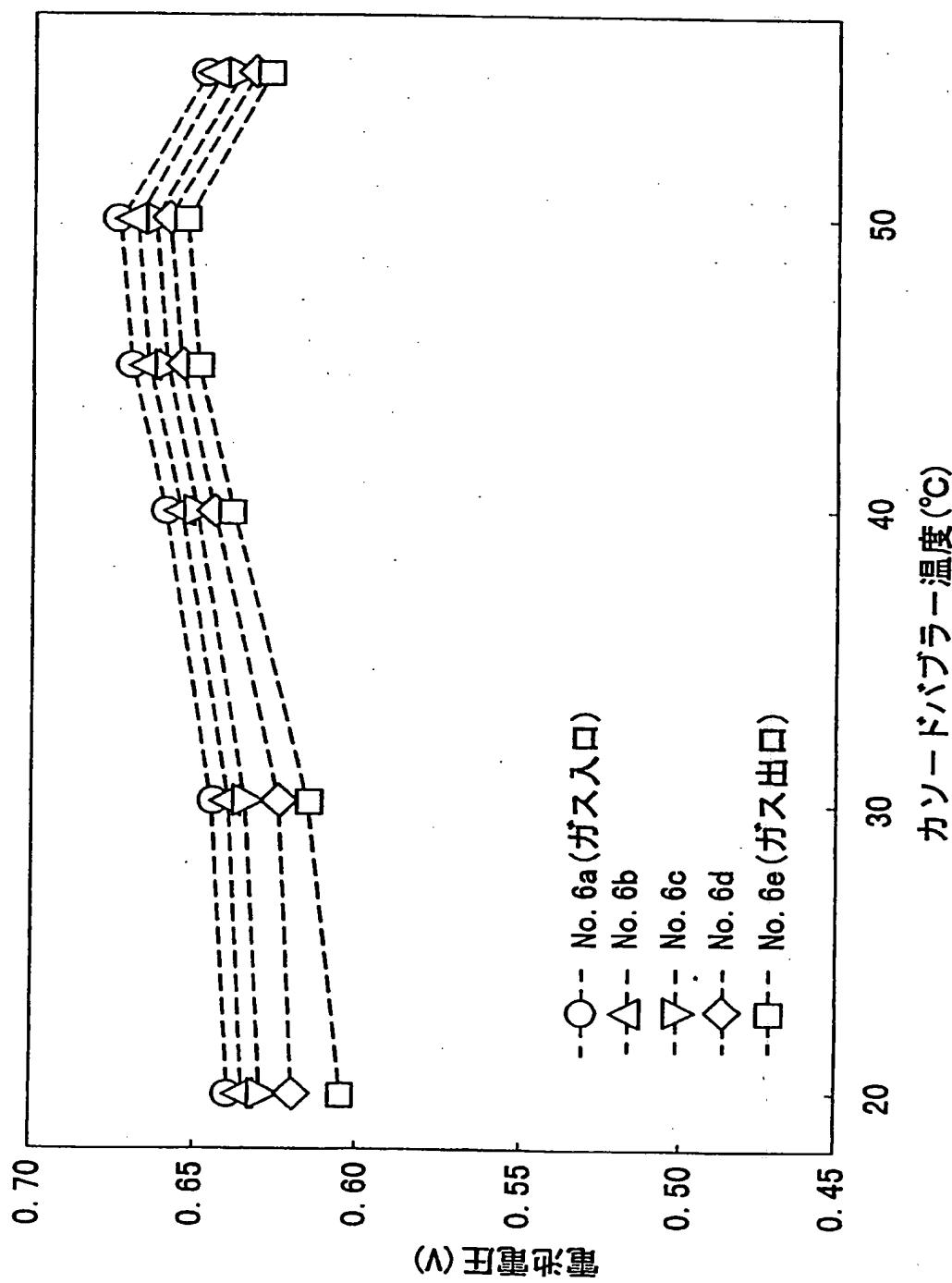


FIG. 7



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP00/02506

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/04, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

**B. FIELDS SEARCHED**

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> H01M8/04, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 8-111230, A (The Kansai Electric Power Co., Inc. et al.), 30 April, 1996 (30.04.96),	1-5
A	Claims; page 3, left column, line 40 to page 4, left column, line 9 (Family: none)	6
X	JP, 10-255828, A (Honda Motor Co., Ltd.), 25 September, 1998 (25.09.98),	1,3-4
A	Claims; page 3, right column, line 21 to page 4, right column, line 33 (Family: none)	2,5-6
X	JP, 10-3936, A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 06 January, 1998 (06.01.98),	1,3-4
A	Claims; page 3, right column, line 35 to page 5, right column, line 32 (Family: none)	2,5-6
X	JP, 7-263010, A (Mazda Motor Corporation), 13 October, 1995 (13.10.95),	1,3-4
A	Claims; page 2, right column, line 40 to page 3, left column, line 14 (Family: none)	2,5-6

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

"*	Special categories of cited documents:
"A"	document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E"	earlier document but published on or after the international filing date
"L"	document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O"	document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P"	document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&"	document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
11 July, 2000 (11.07.00)

Date of mailing of the international search report  
25 July, 2000 (25.07.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 H01M8/04, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. C17 H01M8/04, H01M8/10

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2000年
日本国登録実用新案公報	1994-2000年
日本実用新案登録公報	1996-2000年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	J P, 8-111230, A (関西電力株式会社 外1名) 30. 4月. 1996 (30. 04. 96), 特許請求の範囲, 第3頁左欄40行-第4頁左欄9行 (ファミリー なし)	1-5 6
X A	J P, 10-255828, A (本田技研工業株式会社) 25. 9月. 1998 (25. 09. 98), 特許請求の範囲, 第3頁右欄21行-第4頁右欄33行 (ファミリー なし)	1, 3-4 2, 5-6

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

## 国際調査を完了した日

11.07.00

## 国際調査報告の発送日

25.07.00

## 国際調査機関の名称及び先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

## 特許庁審査官 (権限のある職員)

原 賢一

印

4X 9062

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/02506

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
X	JP, 10-3936, A (三洋電機株式会社) 6. 1月. 1998 (06. 01. 98),	1, 3-4
A	特許請求の範囲、第3頁右欄35行-第5頁右欄32行 (ファミリーなし)	2, 5-6
X	JP, 7-263010, A (マツダ株式会社) 13. 10月. 1995 (13. 10. 95),	1, 3-4
A	特許請求の範囲、第2頁右欄40行-第3頁左欄14行 (ファミリーなし)	2, 5-6